日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed ith this Office.

出願年月日 Date of Application:

2003年 9月30日

出 願 番 号 Application Number:

特願2003-339999

[ST. 10/C]:

[JP2003-339999]

願 人 (pplicant(s):

日本碍子株式会社

CERTIFIED COPY OF PRIORITY DOCUMENT

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2004年 4月28日





【書類名】 特許願 【整理番号】 WP04526

【提出日】 平成15年 9月30日

【あて先】 特許庁長官 今井 康夫 殿

【国際特許分類】 F27B

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内

【氏名】 蔵島 吉彦

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内

【氏名】 半澤 茂

【特許出願人】

【識別番号】 000004064

【氏名又は名称】 日本碍子株式会社

【代理人】

【識別番号】 100088616

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡邉 一平

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2003-197289

【出願日】 平成15年 7月15日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009689 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 特許請求の範囲 1

 【物件名】
 明細書 1

 【物件名】
 図面 1

 【物件名】
 要約書 1

 【包括委任状番号】
 9001231

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

流入したメタンを含む燃料を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段と、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガスとして外部に排出させる焼成炉本体とを備える焼成炉であって、

内部にメタン改質触媒が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副 燃料及び水蒸気からなる改質原料を、前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質 触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて 水素及び二酸化炭素からなる改質ガスを生成させるメタン改質器と、

前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する残留ガスとに分離させる水素分離器と、

前記水素分離器で分離された前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる二酸化炭素固定器と、をさらに備え、

前記燃焼手段が、流入した、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と前記水素分離器で分離された前記水素燃料の全部又は一部との混合燃料を燃焼させて前記燃焼ガスを発生させることにより、前記燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を低減させることが可能な焼成炉。

【請求項2】

水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電する燃料電池をさらに備え、前記水素として、前記燃焼手段が前記水素分離器で分離された前記水素燃料の一部を用いた前記混合燃料を燃焼させる場合に、前記水素燃料の残りの部分を酸素又は空気と反応させる請求項1に記載の焼成炉。

【請求項3】

前記改質用メタン副燃料と前記混合用メタン主燃料との体積比(改質用メタン副燃料:混合用メタン主燃料)が5:95~100:0である請求項1又は2に記載の焼成炉。

【請求項4】

前記焼成炉本体が、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体である請求項1~3のいずれかに記載の焼成炉。

【請求項5】

前記改質用メタン副燃料及び前記混合用メタン主燃料の中の少なくとも一方が液化天然ガス(LNG)である請求項1~4のいずれかに記載の焼成炉。

【請求項6】

前記被焼成体の材質がセラミックである請求項1~5のいずれかに記載の焼成炉。

【請求項7】

前記被焼成体がハニカム構造体である請求項1~6のいずれかに記載の焼成炉。

【請求項8】

流入したメタンを含む燃料を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段と、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを燃焼排ガスとして外部に排出させる焼成炉本体とを備える焼成炉であって、

内部にメタン改質触媒が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副 燃料及び水蒸気からなる改質原料を、前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質 触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて 水素及び二酸化炭素からなる改質ガスを生成させるメタン改質器と、

前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する残留ガスとに分離させる水素分離器と、

前記水素分離器で分離された前記水素燃料を含有する燃料電池用水素と酸素又は空気とを

反応させることにより発電する燃料電池とをさらに備え、

前記燃焼排ガスが有する熱を使用して前記メタン改質器で前記水素を含有する前記改質ガスを発生させ、前記水素分離器により前記改質ガスから前記水素燃料を分離し、前記水素燃料を前記燃料電池用水素として前記燃料電池で発電に使用し、前記燃焼排ガスが有する熱エネルギーを電気エネルギーに変換することが可能な焼成炉。

【請求項9】

前記水素分離器で分離された前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる二酸化炭素固定器をさらに備えた請求項8に記載の焼成炉。

【請求項10】

前記焼成炉本体が、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体である請求項8又は9に記載の 焼成炉。

【請求項11】

前記被焼成体の材質がセラミックである請求項8~10のいずれかに記載の焼成炉。

【請求項12】

前記被焼成体がハニカム構造体である請求項8~11のいずれかに記載の焼成炉。

【請求項13】

燃焼手段にメタンを含む燃料を流入させて燃焼させることにより燃焼ガスを発生させ、前 記燃焼手段で発生した前記燃焼ガスを焼成炉本体内部に導入し、前記燃焼ガスにより、そ の内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを二酸 化炭素を含む燃焼排ガスとして焼成炉本体の外部に排出させる焼成方法であって、

内部にメタン改質触媒が充填されたメタン改質器に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を流入させ、前記改質原料を前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガスを生成させ、

前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを水素分離器の内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する 残留ガスとに分離させ、

前記燃焼手段に、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と前記水素分離器で分離された前記水素燃料の全部又は一部との混合燃料を流入、燃焼させて燃焼ガスを発生させることにより、前記燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を低減させることが可能な焼成方法。

【請求項14】

前記水素分離器で分離された前記残留ガスを二酸化炭素固定器内に流入させ、前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる請求項13に 記載の焼成方法。

【請求項15】

前記燃焼手段で、前記水素分離器で分離された前記水素燃料の一部を用いた前記混合燃料 を燃焼させる場合に、前記水素燃料の残りの部分を燃料電池用水素として、燃料電池に流 入させて、前記燃料電池用水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電する請求項 13又は14に記載の焼成方法。

【請求項16】

前記改質用メタン副燃料と前記混合用メタン主燃料とを、その体積比(改質用メタン副燃料:混合用メタン主燃料)が5:95~100:0となるように用いる請求項13~15 のいずれかに記載の焼成方法。

【請求項17】

前記焼成炉本体として、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体を用いる請求項13~16 のいずれかに記載の焼成方法。

【請求項18】

前記改質用メタン副燃料及び前記混合用メタン主燃料の中の少なくとも一方として、液化

天然ガス (LNG) を用いる請求項13~17のいずれかに記載の焼成方法。

【請求項19】

前記被焼成体の材質として、セラミックを用いる請求項13~18のいずれかに記載の焼成方法。

【請求項20】

前記被焼成体として、ハニカム構造体を用いる請求項13~19のいずれかに記載の焼成 方法。

【請求項21】

燃焼手段にメタンを含む燃料を流入させて燃焼させることにより燃焼ガスを発生させ、前 記燃焼手段で発生した前記燃焼ガスを焼成炉本体内部に導入し、前記燃焼ガスにより、そ の内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを燃焼 排ガスとして焼成炉本体の外部に排出させる焼成方法であって、

内部にメタン改質触媒が充填されたメタン改質器に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を流入させ、前記改質原料を前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガスを生成させ、

前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを水素分離器の内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する 残留ガスとに分離させ、

前記水素分離器で分離された水素燃料を燃料電池用水素として、燃料電池に流入させて、 前記燃料電池用水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電させ、

前記燃焼排ガスが有する熱を使用して前記メタン改質器で前記水素を含有する前記改質ガスを発生させ、前記水素分離器により前記改質ガスから前記水素燃料を分離し、前記水素 燃料を前記燃料電池用水素として前記燃料電池で発電に使用し、前記燃焼排ガスが有する 熱エネルギーを電気エネルギーに変換することが可能な焼成方法。

【請求項22】

前記水素分離器で分離された前記残留ガスを二酸化炭素固定器内に流入させ、前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる請求項21に 記載の焼成方法。

【請求項23】

前記焼成炉本体として、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体を用いる請求項21又は2 2に記載の焼成方法。

【請求項24】

前記被焼成体の材質として、セラミックを用いる請求項21~23のいずれかに記載の焼成方法。

【請求項25】

前記被焼成体として、ハニカム構造体を用いる請求項21~24のいずれかに記載の焼成 方法。 【書類名】明細書

【発明の名称】焼成炉及び焼成方法

【技術分野】

[0001]

本発明は、焼成炉及び焼成方法に関し、更に詳しくは、メタンを含む燃料を燃焼させることによって得られる二酸化炭素を含有する燃焼ガスを、燃焼排ガスとして排出するときの、燃焼排ガス中の含有二酸化炭素量を大幅に削減し、燃焼排ガスが有する熱を回収し、さらに燃料コストを削減することが可能な焼成炉及び焼成方法に関する。

【背景技術】

[0002]

従来、種々の工業分野で被加熱体を加熱する装置として、工業炉が使用されている。この工業炉の中でも炭素を含有する燃料を燃焼させることにより被加熱体を加熱するものは、燃料の燃焼により発熱と同時に二酸化炭素を含有する高温の排ガス(燃焼排ガス)を発生させるものである。近年このような高温排ガス等を排出することによる環境への悪影響が問題となっており、また、従来より燃焼排ガスが有する熱を有効に回収し再利用することも課題となっている。また、さらにこのような二酸化炭素を含有する排ガス発生の問題は、近年特に、地球温暖化の問題等によりクローズアップされており、工業炉からの排ガスに含有される二酸化炭素の量を削減することが強く要請されるようになってきた。

[0003]

これに対し、比較的規模の小さい工業炉である、セラミック等を焼成する焼成炉については、これまで、燃焼排ガスの熱を回収する方策や、二酸化炭素の排出量を削減させるための方策はあまり採られておらず、被加熱体(被焼成体)の加熱に使用した、二酸化炭素を含有する燃焼ガスをそのまま排ガスとして大気に放出していた。一方、例えば、焼成炉本体から出た排ガスを再度焼成炉本体に戻すことにより、排ガスの熱エネルギーを回収しようとする方法が提案されているが(例えば、特許文献 1 参照)、この方法によると、排ガスの熱エネルギーの一部が回収されるため、使用燃料の総量が削減され、それにより発生する二酸化炭素量も削減されることになるが、その削減量としてはあまり大きいものではなかった。

【特許文献1】特開2002-340482号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

 $[0\ 0\ 0\ 4\]$

本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、炭素を含む燃料、特にメタンを含む燃料を燃焼させることによって得られる二酸化炭素を含有する燃焼ガスを、燃焼排ガスとして排出するときの、燃焼排ガスが有する熱を有効に回収し、燃焼排ガス中の含有二酸化炭素量を大幅に削減し、さらに燃料コストを削減することが可能な焼成炉及び焼成方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

[0005]

上記目的を達成するため、本発明によって以下の焼成炉及び焼成方法が提供される。

[0006]

[1]流入したメタンを含む燃料を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段と、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガスとして外部に排出させる焼成炉本体とを備える焼成炉であって、内部にメタン改質触媒が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を、前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガスを生成させるメタン改質器と、前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する残留ガスとに分

離させる水素分離器と、前記水素分離器で分離された前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる二酸化炭素固定器と、をさらに備え、前記燃焼手段が、流入した、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と前記水素分離器で分離された前記水素燃料の全部又は一部との混合燃料を燃焼させて前記燃焼ガスを発生させることにより、前記燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を低減させることが可能な焼成炉(「第一の発明」という)。

[0007]

[2]水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電する燃料電池をさらに備え、前記水素として、前記燃焼手段が前記水素分離器で分離された前記水素燃料の一部を用いた前記混合燃料を燃焼させる場合に、前記水素燃料の残りの部分を酸素又は空気と反応させる「1]に記載の焼成炉。

[0008]

[3]前記改質用メタン副燃料と前記混合用メタン主燃料との体積比(改質用メタン副燃料:混合用メタン主燃料)が5:95~100:0である[1]又は[2]に記載の焼成炉。

[0009]

[4]前記焼成炉本体が、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体である[1]~[3]のいずれかに記載の焼成炉。

[0010]

[5]前記改質用メタン副燃料及び前記混合用メタン主燃料の中の少なくとも一方が液化 天然ガス(LNG)である [1]~ [4]のいずれかに記載の焼成炉。

$[0\ 0\ 1\ 1]$

[6] 前記被焼成体の材質がセラミックである $[1] \sim [5]$ のいずれかに記載の焼成炉

$[0\ 0\ 1\ 2]$

[7] 前記被焼成体がハニカム構造体である [1] ~ [6] のいずれかに記載の焼成炉。 【0013】

[8] 流入したメタンを含む燃料を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段と、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを燃焼排ガスとして外部に排出させる焼成炉本体とを備える焼成炉であって、内部にメタン改質触媒が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質がスを生成させるメタン改質器と、前記メタン改質器と、前記メタン改質器と、前記メタン改質器と、前記メタン改質器と、前記メタン改質器と、前記メタン改質器と、前記水素を選択的に分離生成した前記改質がスを内部に流入させて前記改質がスの中の前記水素を選択的に分離とて水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する機料電池用水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電する燃料電池とをさらに備え、前記燃焼排ガスが有する熱を使用して前記メタン改質器で前記水素燃料を含有する前記改質がスを発生させ、前記水素が重さる熱を使用して前記メタン改質器で前記水素燃料を分離し、前記水焼排がスが有する熱エネルギーを電気エネルギーに変換することが可能な焼成炉(「第二の発明」という)。

[0014]

[9]前記水素分離器で分離された前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に 放出されないように固定化させる二酸化炭素固定器をさらに備えた[8]に記載の焼成炉

[0015]

[10] 前記焼成炉本体が、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体である[8] 又は[9

] に記載の焼成炉。

[0016]

[11] 前記被焼成体の材質がセラミックである [8] \sim [10] のいずれかに記載の焼成炉。

$[0\ 0\ 1\ 7]$

[12] 前記被焼成体がハニカム構造体である[8]~[11] のいずれかに記載の焼成炉。

$[0\ 0\ 1\ 8]$

[13] 燃焼手段にメタンを含む燃料を流入させて燃焼させることにより燃焼ガスを発生させ、前記燃焼手段で発生した前記燃焼ガスを焼成炉本体内部に導入し、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを三酸化炭素を含む燃焼排ガスとして焼成炉本体の外部に排出させる焼成方法であって、内部にメタン改質触媒が充填されたメタン改質器に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を流入させ、前記改質原料を前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガスを生成させ、前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを水素分離器の内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する残留ガスとに分離させ、前記燃焼手段に、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と前記水素分離器で分離された前記水素燃料の全部又は一部との混合燃料を流入、燃焼させて燃焼ガスを発生させることにより、前記燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を低減させることが可能な焼成方法(「第三の発明」という)。

[0019]

[14] 前記水素分離器で分離された前記残留ガスを二酸化炭素固定器内に流入させ、前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる[13]に記載の焼成方法。

[0020]

[15]前記燃焼手段で、前記水素分離器で分離された前記水素燃料の一部を用いた前記混合燃料を燃焼させる場合に、前記水素燃料の残りの部分を燃料電池用水素として、燃料電池に流入させて、前記燃料電池用水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電する[13]又は[14]に記載の焼成方法。

[0021]

[16] 前記改質用メタン副燃料と前記混合用メタン主燃料とを、その体積比(改質用メタン副燃料:混合用メタン主燃料)が5:95~100:0となるように用いる[13]~[15] のいずれかに記載の焼成方法。

[0022]

[17] 前記焼成炉本体として、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体を用いる[13]~[16]のいずれかに記載の焼成方法。

[0023]

[18] 前記改質用メタン副燃料及び前記混合用メタン主燃料の中の少なくとも一方として、液化天然ガス(LNG)を用いる[13]~[17]のいずれかに記載の焼成方法。

[0024]

[19] 前記被焼成体の材質として、セラミックを用いる [13] \sim [18] のいずれかに記載の焼成方法。

[0025]

[20] 前記被焼成体として、ハニカム構造体を用いる[13]~[19] に記載の焼成方法。

[0026]

[21] 燃焼手段にメタンを含む燃料を流入させて燃焼させることにより燃焼ガスを発生

させ、前記燃焼手段で発生した前記燃焼ガスを焼成炉本体内部に導入し、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを燃焼排ガスとして焼成炉本体の外部に排出させる焼成方法であって、内部にメタン改質触媒が充填されたメタン改質器に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を流入させ、前記改質原料を前記燃焼排ガスにより加熱しなが高記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタン改質器で生成でで水素及び二酸化炭素からなる改質がスを生成させ、前記メタン改質器で生成に前記改質がスを水素分離器の内部に流入させて前記改質がスの中の前記水素を選択に分離して水素を主成分とする水素燃料を燃料電池用水素として分離された水素燃料を燃料電池用水素として流入させて、前記燃料電池用水素と酸素又は空気とを反応させることにより発電させ、前記燃焼排ガスが有する熱を発生させ、前記水素分離器により前記改質がスから前記水素を含有する前記水素燃料を発生され、前記水素分離器により前記改質がスから前記水素を含有する前記水素燃料を前記燃料電池不久が高記水素が有する熱エネルギーを電気エネルギーに変換することが可能な焼成方法(「第四の発明」という)。

[0027]

[22] 前記水素分離器で分離された前記残留ガスを二酸化炭素固定器内に流入させ、前記残留ガスの中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる[21]に記載の焼成方法。

[0028]

[23] 前記焼成炉本体として、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体を用いる[21] 又は[22] に記載の焼成方法。

[0029]

[24] 前記被焼成体の材質として、セラミックを用いる [21] \sim [23] のいずれかに記載の焼成方法。

[0030]

[25] 前記被焼成体として、ハニカム構造体を用いる[21]~[24] のいずれかに 記載の焼成方法。

【発明の効果】

$[0\ 0\ 3\ 1]$

[0032]

本発明の焼成炉(第二の発明)によると、焼成炉本体から排出される燃焼排ガスの熱を使用してメタン改質器においてメタンと水蒸気とから水素と二酸化炭素(改質ガス)を発生させ、水素分離器によりその改質ガスから水素を分離して水素燃料を取り出し、その水素燃料を燃料電池用水素として燃料電池で発電させるため、燃焼排ガスの有する熱を有効に回収し、燃料電池による発電に利用することができる。

[0033]

また、本発明の焼成方法(第三の発明)によると、上述した本発明の焼成炉を使用して焼

5/

成する場合と同様に、燃焼手段で燃焼させるメタンを含む燃料として、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料と水蒸気とからなる改質原料をメタン改質触媒により反応させて得られる水素と、の混合燃料を使用するようにしたため、燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を大幅に低減することができる。また、上記改質原料をメタン改質触媒で反応させたときに生成する二酸化炭素を、二酸化炭素固定器により固定させた場合には、改質原料から生成する二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されないようにすることができるため好ましい。ここで固定された二酸化炭素が、上記機焼排ガス中の二酸化炭素における低減された二酸化炭素に相当することになる。さらに、上記改質原料をメタン改質触媒で反応させるときの吸熱反応に必要な熱量として、焼成炉本体から排出される燃焼排ガスの熱量を使用するため、燃焼排ガスの排熱の一部を燃料の燃焼熱として回収することになり、燃料の総使用量を削減することができる。

[0034]

本発明の焼成方法(第四の発明)によると、焼成炉本体から排出される燃焼排ガスの熱を使用してメタン改質器においてメタンと水蒸気とから水素と二酸化炭素(改質ガス)を発生させ、水素分離器によりその改質ガスから水素を分離して水素燃料を取り出し、その水素燃料を燃料電池用水素として燃料電池で発電させるため、燃焼排ガスの有する熱を有効に回収し、燃料電池による発電に利用することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

[0035]

以下、本発明の実施の形態を図面を参照しながら具体的に説明するが、本発明は以下の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、適宜設計の変更、改良等が加えられることが理解されるべきである。

[0036]

図1は、本発明の焼成炉(第一の発明)の一の実施の形態を模式的に示すブロックフロー 図である。そして、図1において矢印は、各燃料、燃焼排ガス、水蒸気、その他の物質等 の移動する状態を示している。

[0037]

図1に示すように、本実施の形態の焼成炉100は、流入したメタンを含む燃料11を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段2と、燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガス12として外部に排出させる焼成炉本体1とを備え、さらに、内部にメタン改質触媒6が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副燃料21及び水蒸気22からなる改質原料23を、燃焼排ガス12により加熱しながらメタン改質触媒6に接触させることにより改質原料23の中のメタンと水蒸気22とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガス24を生成させる(メタン改質反応をさせる)メタン改質器3と、メタン改質器3で生成した改質ガス24を内部に流入させて改質ガス24の中の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料25と二酸化炭素を含有する残留ガス26とに分離させる水素分離器4と、水素分離器4で分離された残留ガス26の中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる二酸化炭素固定器5と、をさらに備えてなるものである。

[0038]

そして、本実施の形態の焼成炉100は、燃焼手段2が、流入した、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料31と水素分離器4で分離された水素燃料25(混合用水素燃料28)との混合燃料32を燃焼させて、すなわち、メタンを含む燃料11として混合燃料32を使用して、燃焼ガスを発生させることにより、燃焼排ガス12中の二酸化炭素含有量を低減させることを可能としている。これにより、燃焼排ガス12をメタン改質器3で使用した後に、改質器排ガス43として外部に排出するときの二酸化炭素の外部への排出量を低減させることとなる。そして、メタン改質器3におけるメタン改質反応を燃焼排ガスの有する熱を使用しながら行うことにより、燃焼排ガスの有する熱を有効に再利用することができる。また、二酸化炭素固定器5は、内部に二酸化炭素を固定するための固定化剤

41として水酸化ナトリウムを流入させ、内部で固定化剤41と残留ガス26とを接触させ、固定化剤41に残留ガス26中に含有される二酸化炭素を吸収させて、炭酸ナトリウムを生成させ、炭酸ナトリウムを含有する廃液42を外部に排出するように形成されている。ここで、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料31において、「メタンを主成分とする」とは、メタンの含有率が80(体積%)以上であることをいう。また、固定化剤41としては、二酸化炭素と反応又は二酸化炭素を吸収することができれば特に制限されるものではなく、NaOH、Mg(OH)2等を挙げることができる。また、各機器間は、所定の配管で繋がれ、各燃料、水蒸気等はその配管内を流れて移動している。

[0039]

このように、本実施の形態の焼成炉100によると、燃焼手段2で燃焼させるメタンを含 む燃料11として、混合用メタン主燃料31と、水素燃料25(混合用水素燃料28)と の混合燃料32を使用するようにしたため、混合燃料32(燃料11)が、燃焼させても 二酸化炭素が発生しない水素(水素燃料25)を含有する分だけ、二酸化炭素の発生を低 減することができる。このとき、混合燃料32に含まれる水素の含有率(水素/混合燃料)は、5~95(体積%)が好ましく、25~75(体積%)がさらに好ましい。5(体 積%)より少ないと、二酸化炭素低減効果が十分でないことがあり、95 (体積%)より 多いときは、メタン改質反応を行うときに、燃焼排ガスだけではなく、他にも熱源を必要 とすることがある。また、上記改質原料23をメタン改質触媒6で反応させたときに生成 する二酸化炭素は、二酸化炭素固定器5により固定されるため、改質原料23から生成す る二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されることはない。さらに、上記改質原料23を メタン改質触媒6で反応させるときの吸熱反応に必要な熱量として、焼成炉本体1から排 出される燃焼排ガス12の熱量を使用するため、燃焼排ガス12の排熱の一部を燃料の燃 焼熱として有効に回収することができ、これにより燃料の総使用量を削減することができ る。ここで、メタン改質反応のための熱源は燃焼排ガス以外にも炉壁からの放熱やセラミ ック焼成時に用いる窯道具を冷却するときに廃棄される熱を使うことができる。

[0040]

図1に示すように、本実施の形態の焼成炉100は、さらに燃料電池7を備えている。燃料電池7は水素(燃料電池用水素)と酸素又は空気とを反応させることにより発電するものであり、水素分離器4で分離して得た水素燃料25の一部を燃料電池用水素28として分岐させ、これを燃料電池7に使用して発電するように構成されている。水素燃料25は含有される水素の純度が高いため、燃料電池7により効率的に発電を行うことができる。例えば、通常の水素を使用して燃料電池を発電させると電力効率が40%程度であったものが、本実施の形態で使用する燃料電池7においては、電力効率が60~70%と飛躍的に高くなる。また、水素分離器4で分離して得た水素燃料25の一部を混合用水素燃料28として最終的に燃焼手段2で燃焼させ、その残りを燃料電池用水素27として燃料電池7での発電に利用することにより、燃焼排ガス12に含有される二酸化炭素量を低減させると同時に、燃焼排ガス12の有する熱を有効に回収して発電に利用することができる。

[0041]

水素燃料25は、その全量を混合用水素燃料28として使用してもよいし、混合用水素燃料28と燃料電池用水素27とに分けて使用してもよい。混合用水素燃料28と燃料電池 用水素27とに分けるときの比率は特に限定されるものではなく、二酸化炭素の排出量と 発電量とを適宜最適値になるようにバランスさせるようにすればよい。

[0042]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、焼成炉本体1としては、特に限定されるものではなく、被焼成体としてセラミック等を内部に搬入させ、燃焼手段2によりメタンを含む燃料11を燃焼させて発生させる燃焼ガスにより、セラミック等の被焼成体を焼成する、通常使用されるものである。被焼成体としては、セラミックハニカム構造体を好適に焼成することができる。ここで、セラミックハニカム構造体とは、セラミック製の、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有するハニカム構造の構造体である。また、焼成炉本体1は、所定量の被焼成体を1回の焼成の単位として、1回ずつ断続

的に焼成するバッチ式であってもよいが、セラミックハニカム構造体等の被焼成体を連続的にその内部に搬入し、その被焼成体を内部で加熱、焼成した後に連続的にその外部に搬出する連続式の焼成炉本体1であることが好ましい。連続的に焼成を行うことにより、定常的に安定して焼成炉本体1から燃焼排ガス12を排出することができるため、メタン改質器3において、燃焼排ガス12の熱によりメタン改質反応を安定して行うことができ、それにより水素燃料25を安定して供給することができ、水素燃料25と混合用メタン主燃料31とを混合させることにより得られる混合燃料32を安定して燃焼手段2に供給することができる。

[0043]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、燃焼手段2は、メタン及び水素を含有する燃料11を効率的に燃焼させることができるものであれば特に限定されるものではない。燃焼手段2は、焼成炉本体1の外部に配設されて、配管により燃焼ガスが焼成炉本体1内に流入されるようにしてよいが、焼成炉本体1の内部に配設されていてもよい。また、燃焼手段2は、その能力や燃焼炉本体1の大きさ等により、焼成炉本体1に一つだけ配設されてもよいし、複数配設されてもよい。燃焼手段2としては、空気と燃料ガスを導入するラインを有するバーナーであれば、特にその形式は問わない。燃焼用の空気を予加熱するリジェネ形式バーナー等も好適に用いることができる。

[0044]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、メタン改質器3は、ステンレス等からなる容器の内部にメタン改質触媒6が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副燃料21及び水蒸気22からなる改質原料23を、燃焼排ガス12により加熱しながらメタン改質触媒6に接触させることにより改質原料23の中のメタンと水蒸気22とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガス24を生成させる(メタン改質反応をさせる)。本実施の形態で用いられるメタン改質器3としては、メタンを反応させて水素を得ることができ、さらにメタン中の炭素を最終的には外部に放出することなるのことができるものであればよい。メタン中の炭素の固定化はメタン改質器3の役の工程で行われてもよく、本実施の形態においては二酸化炭素固定器5において二酸化炭素を固定することがこれに相当する。メタン改質器3におけるメタンと水の反応率(投入した原料(メタンと水)に対して、発生すべき水素の量の理論値に対する実際に発生した水素の量の比率)は50(モル%)以上であることが好ましい。50(モル%)より低いと燃料の使用量が多くなることがある。また、メタンと水の反応率は高いほど好ましい。メタン改質触媒6を充填する容器の形状は、特に限定されるものではなく、筒状、箱形等のいずれの形状でもよい。

[0045]

$[0\ 0\ 4\ 6]$

 体1の種類、大きさ等によって異なるため特に限定されるものではない。

[0047]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、水素分離器4は、メタン改質器3で生 成した水素と二酸化炭素とを含有する改質ガス24を内部に流入させて改質ガス24の中 の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料25と二酸化炭素を含有する残留 ガス26とに分離させるものである。水素分離器4は、水素を含有する混合ガスから水素 を選択的に分離できるものであれば特に限定されるものではなく、例えば、パラジウム又 はパラジウムを含有する合金を膜状に形成したもの(水素分離膜)を筒状に形成し、その 水素分離膜をステンレス等からなる筒状の容器内に配設し、水素分離膜の筒の内部側の空 間と外周側の空間とが繋がらないように形成し、筒状の容器内に水素を含有する混合ガス を流入させ、それを水素分離膜の筒の内部側に導入し、水素だけを選択的に水素分離膜の 内部側から外周側へ透過させ、水素分離膜の筒の外周側に流出した水素を筒状の容器の外 部に流出させ、その他のガスは残留ガス26として水素分離膜の筒の内部をそのまま通過 させて筒状の容器の外部に流出させるように構成したものを好適に使用することができる 。水素を含有する混合ガスは、水素分離膜の筒の外側に導入し、水素を水素分離膜の筒の 内部側に流出するようにしてもよい。ここで、分離された水素は水素を主成分とする水素 燃料25として使用され、その他の二酸化炭素を含有する残留ガス26は、二酸化炭素固 定器5に送られる。上記水素を主成分とする水素燃料25の「水素を主成分とする」とは 、水素の含有率が50(体積%)以上であることをいう。また、上記筒状の容器は筒状で ある必要はなく、内部に空間を有する形状であれば、例えば箱型等でもよい。水素分離膜 は、その機械的強度を向上させるために、セラミック等からなる多孔質体の表面や内部に 配設されるように形成されてもよい。また、水素分離膜は、筒状である必要はなく、平面 状やその他いずれの形状であってもよい。

[0048]

水素分離器 4 は、メタン改質器 3 と一体化して形成され、メタン改質器 3 において発生した水素を、メタン改質器 3 内に配設された水素分離器 4 により選択的に分離し、メタン改質器 3 からその水素を流出させて水素燃料 2 5 として使用してもよい。水素分離器 4 をメタン改質器 3 に配設する方法としては、例えば、筒状に形成した水素分離膜をメタン改質器 3 内に配設し、その筒の内部にメタン改質触媒 6 を配設することができる。この場合、水素分離膜が水素分離器 4 として機能し、水素分離器 4 をメタン改質器 3 内に配設したことになる。それにより、水素分離膜の筒の内部に改質原料 2 3 を導入し、水素分離膜の筒の内部に配設されたメタン改質触媒 6 により、水素を発生させ、発生した水素を水素分離膜の筒の外周側に流出させることができる。そして流出した水素を水素燃料 2 5 として使用する。

[0049]

水素分離器 4 により改質ガス 2 4 から水素を分離するときの水素の分離効率としては、(改質ガス 2 4 に含有される水素の量:分離された水素の量)が 5 0:50~1:99 (体積比)であることが好ましい。50:50 (体積比)より低いと、効率的に燃料を使用することができないことがある。分離効率としては、高いほど好ましいが、1:99 (体積比)であれば燃焼用水素の回収効率としては十分であり、これより高い分離効率を実現するためには、コストが高くなることがある。

[0050]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、二酸化炭素固定器5は、水素分離器4で分離された残留ガス26の中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させるものである。二酸化炭素固定器5は、残留ガス26に含有される二酸化炭素を固定化し、二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないようにすることができれば、特に限定されるものではない。例えば、所定の容器の中に二酸化炭素を固定化する固定化剤41として水酸化ナトリウムの水溶液を入れておき、その中に、残留ガス26を導入し、水酸化ナトリウム水溶液を残留ガス26でバブリングするようにしながら、残留ガス26に含有される二酸化炭素を水酸化ナトリウムと反応させて炭酸ナトリウムを生成させるこ

とにより二酸化炭素を固定化させる方法を好適に使用することができる。ここで、二酸化炭素を固定化するとは、他の物質と反応させたり、他の物質に吸収させたりすることにより、二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されないようにすることをいう。

[0051]

また、二酸化炭素を固定化する方法としては、固定化剤41として水酸化ナトリウム水溶液を使用し、その水酸化ナトリウム水溶液を、所定の容器に入れて循環用ポンプで循環させ、循環する水酸化ナトリウム水溶液中に残留ガス26を流入、混合させ、水酸化ナトリウムと二酸化炭素とを反応させるようにしてもよい。このとき、水酸化ナトリウム及び反応により生成した炭酸ナトリウムを含有する水溶液の循環系には、水酸化ナトリウムを連続的に送り込み、さらにこの循環系から連続的に循環する水溶液を抜き出すようにして、二酸化炭素固定器5を連続的に運転するようにしてもよい。

[0052]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、燃料電池7は、市販のシステムを用いることができる。高分子型、リン酸型、溶融炭酸塩型などいずれでも良いが、排熱が高温であることから、リン酸型又は溶融炭酸塩型が好ましい。また発生できる電力容量は、現在の市販システムの性能から、1システム当たり100KWから200KW程度となるが、これを並列設置するなどの方法をとれば、電力容量は自由に設計できる。そして、水素燃料25の一部が燃料電池用水素27として配管を通じて送られ、燃料電池7において、燃料電池用水素27と空気(空気中の酸素)とが反応して発電される。

[0053]

図1に示す本実施の形態の焼成炉100においては、燃焼手段2で燃焼させる燃料として、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料31と水素分離器4で分離された水素燃料25との混合燃料32を使用する。焼成炉100の運転のスタート時は、燃焼排ガス12が定常的に排出されていない状態(燃焼排ガス12がまだ発生していない状態や徐々に増加している状態)であるため、メタン改質器3による反応を燃焼排ガス12を使用しながら行うことが困難であるため、混合燃料32を使用するのは、燃焼排ガス12が定常的に排出されるようになってからでもよい。この場合、焼成炉100の運転のスタート時には、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料31だけで焼成を行う。また、スタート時のように燃焼排ガス12が定常的に排出されていない状態のときには、メタン改質器3に、蒸気や電気等による他の加熱装置(図示せず)を配設し、その加熱装置を使用しながらメタン改質器3を運転するようにしてもよい。

$[0\ 0\ 5\ 4]$

図1に示す本実施の形態の焼成炉100は、焼成するときに要する熱量が100万~1億 (kJ/Hr)の、セラミックを焼成する焼成炉として好適に使用することができる。

[0055]

改質用メタン副燃料21と混合用メタン主燃料31との体積比(改質用メタン副燃料21:混合用メタン主燃料31)が5:95~100:0 (体積比)であることが好ましい。 改質用メタン副燃料21の比が、5 (体積比)より小さいと、二酸化炭素を十分削減されないことがある。また、混合用メタン主燃料31及び改質用メタン副燃料21の中の少なくとも一方は液化天然ガス(LNG)とすることができる。LNGとすることにより、LNGの燃焼性の良さにより効率的に燃焼させることができ、また、LNGはクリーンで安価な燃料であり、燃焼により硫黄酸化物やダスト等の有害物質を発生しないため好ましい

[0056]

次に、図1に示す本実施の形態の焼成炉100において、混合用メタン主燃料31と水素燃料25との混合燃料32を使用して燃焼手段2で燃焼させたとき(本実施の形態)と、メタンガス(メタン含有率が100(%)のガス)だけを燃料11として使用し燃焼手段2で燃焼させたとき(比較例)との、それぞれの燃料の使用量と発生熱量との違い及び、発生する二酸化炭素の量の違いについて説明する。

[0057]

例えば、改質用メタン副燃料21及び混合用メタン主燃料31としてメタンガスを使用し 、メタン改質器3による反応率が100(%)(1モルのメタンと2モルの水をメタン改 質器3に導入すると4モルの水素が発生する)であり、水素分離器4における水素の分離 効率が100(%)(改質ガス24に含有される水素の全てが水素分離器4で分離され、 水素燃料25となる)であり、水素燃料25の全量を混合用水素燃料28として混合用メ タン主燃料31と混合するとする。この場合、例えば、メタンガスだけを1 (Nm³/H r) 使用して燃焼手段2で燃焼させたとすると、39800 (k J/H r) の熱量が発生 することになる(比較例)。これに対し、本実施の形態の一例として、混合用メタン主燃 料として、メタンガスを0.5(Nm3/Hr)使用し、改質用メタン副燃料としてメタ ンガスを 0. 4 (N m³/H r) 使用したとすると、メタン改質器 3 から 1. 6 (N m³/ Hr) の水素が発生し、それが水素分離器4により分離され、分離された水素が水素燃料 25として上記改質用メタン副燃料 (メタンガス) と混合されて混合燃料 32 (メタンガ スが 0.5 (N m³ / H r)、水素が 1.6 (N m³ / H r)の混合ガス)となる。この混 合燃料32を燃焼手段2で燃焼させると、メタンガス0.5(Nm³/Hr)より、19 900 (k J / H r) の熱量が発生し、水素 1.6 (N m³ / H r) より、20480 (k J / H r) の熱量が発生する。従って、混合燃料 3 2 を燃焼させることにより得られる 熱量は40380(k J / H r)となる。

[0058]

以上より、メタンガスだけを燃焼させると、メタンガスの使用量が1 (Nm³/Hr)のときに、39800 (k J/Hr)の熱量が得られるのに対し、本実施の形態の場合には、メタンガスの総使用量(混合用メタン主燃料31と改質用メタン副燃料21との合計)が0.9 (Nm³/Hr)のときに、40380 (k J/Hr)の熱量が得られることになる。また、メタンガス1モルを燃焼させたときに発生する二酸化炭素の量は1モルである(理論量)ため、上記比較例の場合、二酸化炭素の発生量が1 (Nm³/Hr)となるのに対し、上記本実施の形態の一例の場合は、二酸化炭素の発生量が0.5 (Nm³/Hr)となる。従って、本実施の形態と、比較例の場合とを比較すると、燃焼手段2での燃焼により発生する熱量をほぼ同等(本実施の形態のほうが若干大きい)にするために必要なメタンガスの使用量は、本実施の形態の場合が比較例の場合に対して10%削減され、さらに発生する二酸化炭素の量は、本実施の形態の場合が比較例の場合に対して50%削減されたことになる。

[0059]

次に、本発明の焼成炉(第二の発明)の一の実施の形態について図面を参照しながら説明する。図2は、本発明の焼成炉(第二の発明)の一の実施の形態を模式的に示すブロックフロー図である。そして、図2において矢印は、各燃料、燃焼排ガス、水蒸気、その他の物質等の移動する状態を示している。

[0060]

図2に示すように、本実施の形態の焼成炉200は、流入したメタンを含む燃料61を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段52と、燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガス62として外部に排出させる焼成炉本体51とを備え、さらに、内部にメタン改質触媒56が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副燃料71及び水蒸気72からなる改質原料73を、燃焼排ガス62により加熱しながらメタン改質触媒56に接触させることにより改質原料73の中のメタンと水蒸気72とを反応させて水素及質器6に被化炭素からなる改質ガス74を生成させる(メタン改質反応をさせる)メタン改質器53と、メタン改質器53で生成した改質ガス74を内部に流入させて改質ガス74の中の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料75と二酸化炭素を含有する残留中の工酸化炭素を対スの状態で外部に放出されないように固定化させる二酸化炭素固定器5と、水素分離器54で分離された水素燃料75を含有する燃料電池用水素77と酸素又は空気とを反応させることにより発電する燃料電池57とをさらに備えてなるものである

[0061]

そして、本実施の形態の焼成炉200は、メタン改質器53におけるメタン改質反応を燃焼排ガス62の有する熱を使用しながら行うことにより、燃焼排ガス62の有する熱を有効に再利用することができる。また、二酸化炭素固定器55は、内部に二酸化炭素を固定するための固定化剤91として水酸化ナトリウムを流入させ、内部で固定化剤91と残留ガス76とを接触させ、固定化剤91に残留ガス76中に含有される二酸化炭素を吸収させて、炭酸ナトリウムを生成させ、炭酸ナトリウムを含有する廃液92を外部に排出するように形成されている。また、固定化剤91としては、二酸化炭素と反応又は二酸化炭素を吸収することができれば特に制限されるものではなく、NaOH、Mg(OH)2等を挙げることができる。また、各機器間は、所定の配管で繋がれ、各燃料、水蒸気等はその配管内を流れて移動している。

[0062]

このように、本実施の形態の焼成炉200は、燃料電池7を備え、水素燃料75を含有す る燃料電池用水素77を使用して発電しているため、燃焼排ガス62が有する熱エネルギ ーを電気エネルギーに効率的に変換することができる。つまり、燃焼排ガス62が有する 熱を使用してメタン改質器53で水素を含有する改質ガス74を発生させ、水素分離器5 4により改質ガス74から水素燃料75を分離し、分離された水素燃料75の全量を燃料 電池用水素77として燃料電池57で発電に使用することにより、燃焼排ガス62が有す る熱エネルギーを利用価値のより高い電気エネルギーに効率的に変換しているのである。 燃料電池57は水素(燃料電池用水素)と酸素又は空気とを反応させることにより発電す るものであるが、燃料電池用水素77として使用する水素燃料75は含有される水素の純 度が高いため、効率的に発電を行うことができる。例えば、通常の水素を使用して燃料電 池を発電させると電力効率が40%程度であったものが、本実施の形態で使用する燃料電 池7においては、電力効率が60~70%と飛躍的に高くなる。炭酸ガス排出量に関して は、燃料電池は、火力発電などと比較するとその熱エネルギーを電気エネルギーに変換す る効率は2倍程度高い。ゆえに二酸化炭素排出量の低減のためには火力発電などに由来す る電力ではなく、燃料電池由来の電力を用いれば、同じ電力量に対する炭酸ガス削減量は 半減する。ゆえに、二酸化炭素の固定化をあえて行うこと無しに発生二酸化炭素の削減が 可能である。二酸化炭素の固定化を行えば、さらに高い二酸化炭素削減効果を生じる。

[0063]

また、本実施の形態の焼成炉200によると、上記改質原料23をメタン改質触媒6で反応させたときに生成する二酸化炭素は、二酸化炭素固定器5により固定されるため、改質原料23から生成する二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されることはない。ここで、メタン改質反応のための熱源は燃焼排ガス以外にも炉壁からの放熱やセラミック焼成時に用いる窯道具を冷却するときに廃棄される熱を使うことができ、更に熱の有効回収を図ることができる。

 $[0\ 0\ 6\ 4]$

本実施の形態の焼成炉200においては、残留ガス76に一酸化炭素等の燃焼可能な物質が含有されていることがあるため、このような燃焼可能な物質が含有されているときには、残留ガス76の一部又は全部を燃焼手段52で燃焼させてもよい。燃料の回収となるため好ましい。

 $[0\ 0\ 6\ 5]$

図2に示す、本実施の形態の焼成炉200における、焼成炉本体51、燃焼手段52、メタン改質器53、水素分離器54、二酸化炭素固定器55、及び燃料電池57のそれぞれは、上述した図1に示す第一の発明の焼成炉100における、焼成炉本体1、燃焼手段2、メタン改質器3、水素分離器4及び二酸化炭素固定器5、燃料電池7のそれぞれの場合と同様に構成することが好ましく、これにより、同様の効果を得ることができる。但し、メタンを含有する燃料61はメタンを主成分とすることが好ましく、燃焼手段52は、メタンを主成分とする燃料61を効率的に燃焼させることができるものであることが好まし

い。ここで「メタンを主成分とする」とは、メタンの含有率が80(体積%)以上であることをいう。また、本実施の形態の焼成炉200は、水素燃料75の全量を燃料電池57における発電に使用するため、水素燃料75の一部を燃料61に混合するための分岐用の配管等は必要としない。

[0066]

図 2 に示す本実施の形態の焼成炉 2 0 0 は、焼成するときに要する熱量が 1 0 0 5 - 1 億 (k J J H r) の、セラミックを焼成する焼成炉として好適に使用することができる。また、被焼成体としては、上記第一の発明の場合と同様に、セラミックハニカム構造体を好適に焼成することができる。

[0067]

次に、本発明の焼成方法(第三の発明)の一の実施の形態について図面を参照しながら説明する。図3は、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉300を模式的に示すブロックフロー図である。

[0068]

本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉300としては、図3に示すように、上述した 本発明の焼成炉100(図1参照)と同様の焼成炉であることが好ましい。本実施の形態 の焼成方法は、燃焼手段102にメタンを含む燃料111を流入させて燃焼させることに より燃焼ガスを発生させ、燃焼手段102で発生した燃焼ガスを焼成炉本体101内部に 導入し、燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、 焼成後の燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガス112として焼成炉本体101の外部に 排出させる焼成方法である。そして、さらに内部にメタン改質触媒106が充填されたメ タン改質器103に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料121及び水蒸気122 からなる改質原料123を流入させ、改質原料123を燃焼排ガス112により加熱しな がらメタン改質触媒106に接触させることにより改質原料123の中のメタンと水蒸気 122とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガス124を生成させる。そして 、さらにメタン改質器103で生成した改質ガス124を水素分離器104の内部に流入 させて改質ガス124の中の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料125 と二酸化炭素を含有する残留ガス126とに分離させ、水素分離器104で分離された残 留ガス126を二酸化炭素固定器105内に流入させ、残留ガス126の中の二酸化炭素 をガスの状態で外部に放出されないように固定化剤141により固定化させ、燃焼手段1 02に、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料131と水素分離器104で分離され た水素燃料125(混合用水素燃料128)との混合燃料132を流入、燃焼させて燃焼 ガスを発生させることにより、燃焼排ガス112中の二酸化炭素含有量を低減させること が可能な焼成方法である。メタン改質器103において使用された燃焼排ガス112は、 その後、改質器排ガス143として外部に排出される。また、固定化剤141により二酸 化炭素を固定化した後には、廃液142として外部に排出される。

[0069]

ここで、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料131において、「メタンを主成分とする」とは、メタンの含有率が80(体積%)以上であることをいう。また、水素を主成分とする水素燃料125の「水素を主成分とする」とは、水素の含有率が50(体積%)以上であることをいう。

[0070]

このように、本実施の形態の焼成方法によると、燃焼手段102で燃焼させるメタンを含む燃料111として、混合用メタン主燃料131と、水素燃料125(混合用水素燃料128)との混合燃料132を使用するようにしたため、混合燃料132(燃料111)が燃焼させても二酸化炭素が発生しない水素(混合用水素燃料128)を含有する分だけ、二酸化炭素の発生を低減することができる。このとき、混合燃料132に含まれる水素の含有率(水素/混合燃料)は、5~95(体積%)が好ましく、25~75(体積%)がさらに好ましい。5(体積%)より少ないと、二酸化炭素低減効果が十分でないことがあり、95(体積%)より多いときは、メタン改質反応を行うときに、燃焼排ガスだけでは

なく、他にも熱源を必要とすることがある。また、上記改質原料123をメタン改質触媒106で反応させたときに生成する二酸化炭素は、二酸化炭素固定器105により固定されるため、改質原料123から生成する二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されることはない。さらに、上記改質原料123をメタン改質触媒106で反応させるときの吸熱反応に必要な熱量として、焼成炉本体101から排出される燃焼排ガス112の熱量を使用するため、燃焼排ガス112の排熱の一部を燃料の燃焼熱として回収することになり、燃料の総使用量を削減することができる。

[0071]

図3に示すように、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉300は、さらに燃料電池107を備え、水素燃料125の一部を燃料電池用水素127として使用し、発電することが可能に構成されている。燃料電池107は水素(燃料電池用水素)と酸素又は空気とを反応させることにより発電するものであり、本実施の形態の焼成方法(第三の発明)においては、水素分離器104で分離して得た水素燃料125の一部を燃料電池用水素127として分離し、これを燃料電池107に使用して発電することができる。水素燃料125は含有される水素の純度が高いため、その一部を燃料電池用水素127として使用して燃料電池107で効率的に発電を行うことができる。例えば、通常の水素を使用して燃料電池を発電させると電力効率が40%程度であったものが、本実施の形態において燃料電池107で発電すると、電力効率が60~70%と飛躍的に向上する。また、水素分離器104で分離して得た水素燃料125の一部を混合用水素燃料128として、水素分離器104で分離して得た水素燃料125の一部を混合用水素燃料128として、水素分離器104で分離して得た水素燃料125の一部を混合用水素燃料128として、水素がでの発電に利用することにより、燃焼排ガス112に含有される二酸化炭素量を低減させると同時に、燃焼排ガス112の有する熱を有効に回収して発電に利用することができる。利用価値の高い電気エネルギーを得ることができる。

[0072]

炭酸ガス排出量に関しては、燃料電池は、火力発電などと比較するとその熱エネルギーを電気エネルギーに変換する効率は2倍程度高い。ゆえに二酸化炭素排出量の低減のためには火力発電などに由来する電力ではなく、燃料電池由来の電力を用いれば、同じ電力量に対する炭酸ガス削減量は半減する。ゆえに、二酸化炭素の固定化をあえて行うこと無しに発生二酸化炭素の削減が可能である。二酸化炭素の固定化を行えば、さらに高い二酸化炭素削減効果を生じる。

[0073]

水素燃料125は、その全量を混合用水素燃料128として使用してもよいし、混合用水素燃料128と燃料電池用水素127とに分けて使用してもよい。混合用水素燃料128 と燃料電池用水素127とに分けるときの比率は特に限定されるものではなく、二酸化炭素の排出量と発電量とを適宜最適値になるようにバランスさせるようにすればよい。

$[0\ 0\ 7\ 4]$

図3に示す、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉300において、焼成炉本体101は、上記本発明の焼成炉における焼成炉本体の場合と同様に構成することが好ましく、これにより、同様の効果を得ることができる。また、焼成炉本体101は、所定量の被焼成体ずつを断続的に焼成するバッチ式であってもよいが、セラミック構造体等の被焼成体を連続的にその内部に搬入し、その被焼成体を内部で加熱、焼成した後に連続的にその外部に搬出する連続式の焼成炉本体101であることが好ましい。連続的に焼成を行うことにより、定常的に安定して焼成炉本体101から燃焼排ガス112を排出することができるため、メタン改質器103において、燃焼排ガス112の熱によりメタン改質反応を安定して行うことができ、それにより水素燃料125を安定して供給することができ、水素燃料125と混合用メタン主燃料131とを混合させることにより得られる混合燃料132を安定して燃焼手段102に供給することができる。

[0075]

また、本実施の形態の焼成方法により焼成する被焼成体としては食器・タイル・衛生陶器 ・ガイシなどのセラミック、更にはセラミックハニカム構造体を好適に焼成することがで きる。ここで、セラミックハニカム構造体とは、セラミック製の、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有するハニカム構造の構造体である。

[0076]

図3に示す、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉300において、燃焼手段102、メタン改質器103、水素分離器104及び二酸化炭素固定器105は、図1に示す、上記本発明の焼成炉100(第一の発明)における、燃焼手段2、メタン改質器3、水素分離器4及び二酸化炭素固定器5の場合と同様に構成することが好ましく、これにより、同様の効果を得ることができる。

[0077]

本実施の形態の焼成方法においては、上述した図1に示す本発明の焼成炉100を使用して焼成する場合と同様に、燃焼手段102で燃焼させる燃料として、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料131と水素分離器104で分離された水素燃料125(混合用水素燃料128)との混合燃料132を使用する。焼成炉300の運転のスタート時は、燃焼排がス112が定常的に排出されていない状態(燃焼排ガス112がまだ発生していない状態や徐々に増加している状態)であるため、メタン改質器103による反応を燃焼排ガス112を使用しながら行うことが困難であり、混合燃料132を使用するのは、燃焼排がス112が定常的に排出されるようになってからでもよい。この場合、焼成炉300の運転のスタート時には、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料131だけで焼成を行う。また、スタート時の燃焼排ガス112が定常的に排出されていない状態のときには、メタン改質器103に、蒸気や電気等による他の加熱装置(図示せず)を配設し、その加熱装置を使用しながらメタン改質器103を運転するようにしてもよい。

[0078]

本実施の形態の焼成方法は、セラミックを100万~1億(k J/H r)の熱量で焼成するときに好適に使用することができる。100万(k J/H r)よりも小さな設備の場合には、幾つかの小さな設備を組み合わせて本発明を用いることもできる。100万(k J/H r)以下の設備でも本発明は適用できるが、メタンの水蒸気改質設備が高額な現状では経済的ではない。

[0079]

本実施の形態の焼成方法においては、上述した図1に示す本発明の焼成炉100を使用して焼成する場合と同様に、改質用メタン副燃料121と混合用メタン主燃料131との体積比(改質用メタン副燃料121:混合用メタン主燃料131)を5:95~100:0(体積比)とすることが好ましい。改質用メタン副燃料121の比が、5(体積比)より小さいと、二酸化炭素が十分削減されないことがある。また、混合用メタン主燃料131及び改質用メタン副燃料121の中の少なくとも一方は液化天然ガス(LNG)とすることができる。LNGとすることにより、LNGの燃焼性の良さにより効率的に燃焼させることができ、また、LNGはクリーンで安価な燃料であり、燃焼により硫黄酸化物やダスト等の有害物質を発生しないため好ましい。

[0800]

本実施の形態の焼成方法として混合用メタン主燃料131と水素燃料125(混合用水素燃料128)との混合燃料132を使用して燃焼手段102で燃焼させたとき(本実施の形態)と、メタンガス(メタン含有率が100(%)のガス)だけを燃料111として使用し、焼成手段102で燃焼させたとき(比較例)との、それぞれの燃料の使用量と発生熱量との違い及び、発生する二酸化炭素の量の違いを示すと、上述した図1に示す本発明の焼成炉100において同様の比較をした場合と同様の結果が得られる。すなわち、メタンガスだけを燃料111として燃焼させると、メタンガス1(Nm³/Hr)の使用に対して39800(kJ/Hr)の熱量が得られるのに対し、本実施の形態の場合には、メタンガスの総使用量(混合用メタン主燃料131と改質用メタン副燃料121との合計)が0.9(Nm³/Hr)であるのに対して、得られる熱量が40380(kJ/Hr)となる。また、メタンガス1モルを燃焼させたときに発生する二酸化炭素の量は1モルである(理論量)ため、上記比較例の場合には、1(Nm³/Hr)の二酸化炭素が発生す

るのに対し、上記本実施の形態の場合は、0.5 (Nm³/Hr)の二酸化炭素が発生することになる。従って、本実施の形態と、比較例の場合とを比較すると、燃焼手段102での燃焼により発生する熱量をほぼ同等(本実施の形態のほうが若干大きい)にするために必要なメタンガスの使用量は、本実施の形態の場合が比較例の場合に対して10%削減され、さらに発生する二酸化炭素の量は、本実施の形態の場合が比較例の場合に対して50%削減されたことになる。

[0081]

次に、本発明の焼成方法(第四の発明)の一の実施の形態について図面を参照しながら説明する。図4は、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉400を模式的に示すブロックフロー図である。

[0082]

本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉400としては、図4に示すように、上述した - 本発明の焼成炉200(図2参照)と同様の焼成炉であることが好ましい。本実施の形態 の焼成方法は、燃焼手段152にメタンを含む燃料161を流入させて燃焼させることに より燃焼ガスを発生させ、燃焼手段152で発生した燃焼ガスを焼成炉本体151内部に 導入し、燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、 焼成後の燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガス162として焼成炉本体151の外部に 排出させる焼成方法である。そして、さらに内部にメタン改質触媒156が充填されたメ タン改質器153に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料171及び水蒸気172 からなる改質原料173を流入させ、改質原料173を燃焼排ガス162により加熱しな がらメタン改質触媒156に接触させることにより改質原料173の中のメタンと水蒸気 172とを反応させて水素及び二酸化炭素をからなる改質ガス174を生成させる。そし て、さらにメタン改質器153で生成した改質ガス174を水素分離器154の内部に流 入させて改質ガス174の中の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料17 5と二酸化炭素を含有する残留ガス176とに分離させ、水素分離器154で分離された 残留ガス176を二酸化炭素固定器155内に流入させ、残留ガス176の中の二酸化炭 素をガスの状態で外部に放出されないように固定化剤191により固定化させ、水素分離 器154で分離された水素燃料175を燃料電池用水素177として、燃料電池157に 流入させて、燃料電池用水素177と酸素又は空気とを反応させることにより発電させ、 これにより、燃焼排ガス162が有する熱を使用してメタン改質器153で水素を含有す る改質ガス174を発生させ、水素分離器154により改質ガス174から水素燃料17 5を分離し、水素燃料175を燃料電池用水素177として燃料電池157で発電に使用 し、燃焼排ガス162が有する熱エネルギーを電気エネルギーに変換することが可能な焼 成方法である。メタン改質器153において使用された燃焼排ガス162は、その後、改 質器排ガス193として外部に排出される。また、固定化剤191により二酸化炭素を固 定化した後には、廃液192として外部に排出される。

[0083]

このように本実施の形態の焼成方法によれば、水素燃料125の全量を燃料電池用水素127として使用し、燃料電池157により発電するため、燃焼排ガス162の有する熱を有効に回収して発電に利用することができ、より利用価値の高い電気エネルギーを得ることができる。水素燃料125は含有される水素の純度が高いため、燃料電池用水素127として使用することにより、燃料電池107で効率的に発電を行うことができる。例えば、通常の水素を使用して燃料電池を発電させると電力効率が40%程度であったものが、本実施の形態において燃料電池107で発電すると、電力効率が60~70%と飛躍的に向上する。

[0084]

また、本実施の形態の焼成方法によると、上記改質原料173をメタン改質触媒156で 反応させたときに生成する二酸化炭素は、二酸化炭素固定器155により固定されるため 、改質原料173から生成する二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されることはない。

[0085]

図4に示す、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉400において、焼成炉本体151は、図1に示す、上記本発明の焼成炉(第1の発明)における焼成炉本体1の場合と同様に構成することが好ましく、これにより、同様の効果を得ることができる。また、焼成炉本体151は、所定量の被焼成体ずつを断続的に焼成するバッチ式であってもよいが、セラミック構造体等の被焼成体を連続的にその内部に搬入し、その被焼成体を内部で加熱、焼成した後に連続的にその外部に搬出する連続式の焼成炉本体151であることが好ましい。連続的に焼成を行うことにより、定常的に安定して焼成炉本体151から燃焼排ガス162を排出することができるため、メタン改質器153において、燃焼排ガス162の熱によりメタン改質反応を安定して行うことができ、それにより水素燃料175を安定して供給することができ、安定して燃料電池157により発電することができる。

[0086]

また、本実施の形態の焼成方法により焼成する被焼成体としては食器・タイル・衛生陶器・ガイシなどのセラミック、更にはセラミックハニカム構造体を好適に焼成することができる。ここで、セラミックハニカム構造体とは、セラミック製の、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有するハニカム構造の構造体である。

[0087]

図4に示す、本実施の形態の焼成方法に使用する焼成炉400において、燃焼手段152、メタン改質器153、水素分離器154及び二酸化炭素固定器155は、図1に示す、上記本発明の焼成炉100(第一の発明)における、燃焼手段2、メタン改質器3、水素分離器4及び二酸化炭素固定器5の場合と同様に構成することが好ましく、これにより、同様の効果を得ることができる。但し、メタンを含有する燃料161は、メタンを主成分とすることが好ましく、燃焼手段152は、メタンを主成分とする燃料161を効率的に燃焼させることができるものであることが好ましい。ここで、「メタンを主成分とする」とは、メタンの含有率が80(体積%)以上であることをいう。

[0088]

本実施の形態の焼成炉400においては、残留ガス176に一酸化炭素等の燃焼可能な物質が含有されていることがあるため、このような燃焼可能な物質が含有されているときには、残留ガス176の一部又は全部を燃焼手段152で燃焼させてもよい。燃料の回収となるため好ましい。

[0089]

本実施の形態の焼成方法は、セラミックを100万~1億(k J/H r)の熱量で焼成するときに好適に使用することができる。100万(k J/H r)よりも小さな設備の場合には、幾つかの小さな設備を組み合わせて本発明を用いることもできる。100万(k J/H r)以下の設備でも本発明は適用できるが、メタンの水蒸気改質設備が高額な現状では経済的ではない。

【産業上の利用可能性】

[0090]

窯業等において、セラミック等を焼成する焼成炉として利用することができ、これにより、当該焼成炉から排出される燃焼排ガスが有する熱を回収することが可能となり、燃焼排ガスに含有される二酸化炭素を低減させ、大気中に放出される二酸化炭素量を低減することが可能となり、さらに燃料コストを低減することが可能となる。また、燃焼排ガスの熱エネルギーを回収して利用することにより燃料電池で発電を行うことが可能となる。

【図面の簡単な説明】

[0091]

【図1】本発明の焼成炉(第一の発明)の一の実施の形態を模式的に示すブロックフロー図である。

【図2】本発明の焼成炉(第二の発明)の一の実施の形態を模式的に示すブロックフロー図である。

【図3】本発明の焼成方法(第三の発明)の一の実施の形態に使用する焼成炉を模式的に示すブロックフロー図である。

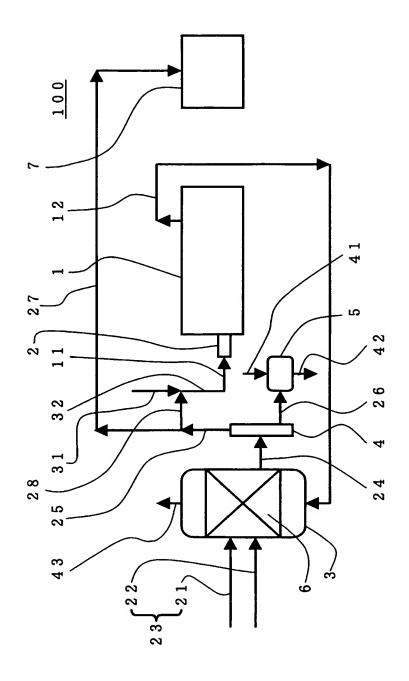
【図4】本発明の焼成方法(第四の発明)の一の実施の形態に使用する焼成炉を模式的に示すブロックフロー図である。

【符号の説明】

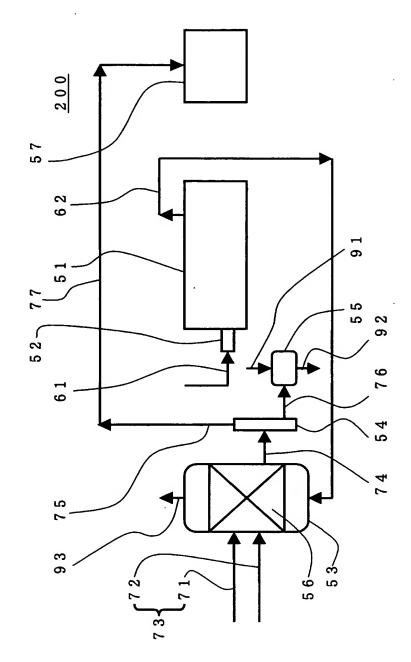
[0092]

1,51,101,151…焼成炉本体、2,52,102,152…燃焼手段、3,53,103,153…メタン改質器、4,54,104,154…水素分離器、5,55,105,155…二酸化炭素固定器、6,56,106,156…メタン改質触媒、7,57,107,157…燃料電池、11,61,111,161…燃料、12,62,112,162…燃焼排ガス、21,71,121,171…改質用メタン副燃料、22,72,122,172…水蒸気、23,73,123,173…改質原料、24,74,124,174…改質ガス、25,75;125,175…水素燃料、26,76,126,176…残留ガス、27,77,127,177…燃料電池用水素、28,128…混合用水素燃料、31,131…混合用メタン主燃料、32,132…混合燃料、41,91,141,191…固定化剤、42,92,142,192…廃液、43,93,143,193…改質器排ガス、100,200,300,400…焼成炉。

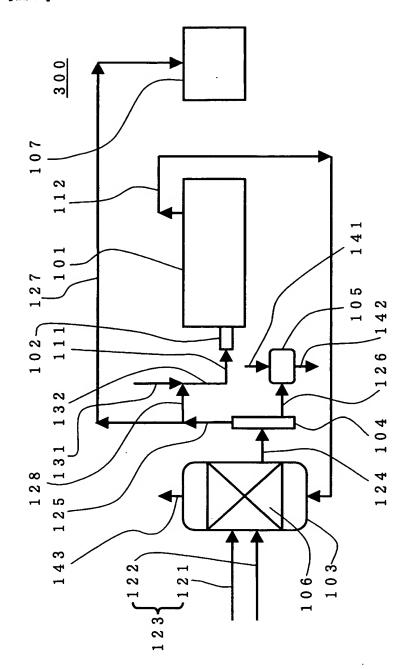
【書類名】図面 【図1】



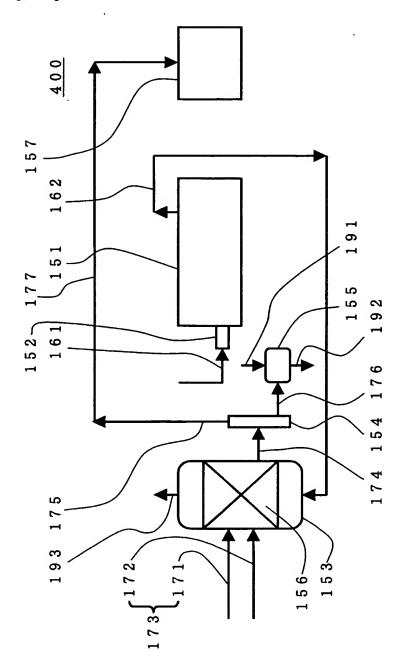
[図2]



【図3】



【図4】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】メタン含有燃料の燃焼により発生する、二酸化炭素を含有する燃焼排ガスを排出するときの、燃焼排ガス中の含有二酸化炭素量を大幅に削減し、燃料コストを削減することが可能な焼成炉を提供する。

【解決手段】燃料11を燃焼させる燃焼手段2と、被焼成体を焼成し燃焼排ガス12を排出させる焼成炉本体1と、改質用メタン副燃料21及び水蒸気22からなる改質原料23を、燃焼排ガス12で加熱しながら内部に充填されたメタン改質触媒6により反応させて、水素及び二酸化炭素からなる改質ガス24を生成させるメタン改質器3と、改質ガス24を水素燃料25と残留ガス26とに分離する水素分離器4と、残留ガス26中の二酸化炭素を固定化する二酸化炭素固定器5とを備え、燃焼手段2が混合用メタン主燃料31と水素燃料25との混合燃料32を燃焼させる焼成炉100。

【選択図】図1

認定・付加情報

特許出願の番号 特願2003-339999

受付番号 50301617688

書類名 特許願

担当官 第五担当上席 0094

作成日 平成15年10月 3日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】 000004064

【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

【氏名又は名称】 日本碍子株式会社

【代理人】 申請人

【識別番号】 100088616

【住所又は居所】 東京都台東区浅草橋3丁目20番18号 第8菊

星タワービル3階 渡邉一平国際特許事務所

【氏名又は名称】 渡邉 一平



特願2003-339999

出願人履歴情報

識別番号

[000004064]

1. 変更年月日

1990年 8月24日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

氏 名 日本碍子株式会社